#### (19) 世界知的所有権機関 国際事務局



## 

(43) 国際公開日 2004 年7 月22 日 (22.07.2004)

**PCT** 

#### (10) 国際公開番号 WO 2004/061876 A1

(51) 国際特許分類7:

H01F 10/16

(21) 国際出願番号:

PCT/JP2003/016097

(22) 国際出願日:

2003年12月16日(16.12.2003)

(25) 国際出願の言語:

日本語

(26) 国際公開の言語:

日本語

(30) 優先権データ: 特願 2002-381917

2002年12月27日(27.12.2002) JP

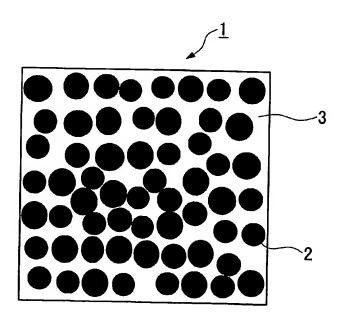
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): TDK 株式会社 (TDK CORPORATION) [JP/JP]; 〒103-8272 東京都 中央区 日本橋一丁目 1 3番 1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 崔 京九

(CHOI,Kyung-Ku) [KR/JP]; 〒103-8272 東京都 中央区日本橋一丁目13番1号 TDK株式会社内 Tokyo (JP). 村瀬 琢 (MURASE,Taku) [JP/JP]; 〒103-8272 東京都中央区日本橋一丁目13番1号 TDK株式会社内 Tokyo (JP). 平塚信之 (HIRATSUKA,Nobuyuki) [JP/JP]; 〒338-8570 埼玉県 さいたま市桜区下大久保255 埼玉大学内 Saitama (JP). 柿崎浩一 (KAK-IZAKI,Kouichi) [JP/JP]; 〒338-8570 埼玉県 さいたま市桜区下大久保255 埼玉大学内 Saitama (JP).

- (74) 代理人: 大場 充 (OBA,Mitsuru); 〒101-0032 東京都 千 代田区 岩本町 1 丁目 4 番 3 号 KMビル 8 階 大場国 際特許事務所 Tokyo (JP).
- (81) 指定国(国内): CN, JP, KR, US.
- (84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR).

[続葉有]

- (54) Title: GRANULAR SUBSTANCE, MAGNETIC THIN FILM, AND MAGNETIC DEVICE
- (54) 発明の名称: グラニュラー物質、磁性薄膜、磁気素子



(57) Abstract: A granular substance (1) having a soft magnetic characteristic. The granular substance (1) contains a matrix (3) of a nonmagnetic insulating organic material and ferromagnetic metallic particles (2) dispersed in the matrix (3) and having an average diameter of 50 nm or less. The volume ratio of the matrix (3) ranges from 5 to 50%. When the granular substance (1) is formed into a thin film, the film exhibits a complex permeability the real part ( $\mu'$ ) of which is 40 or more at 1 GHz, a performance index Q (Q= $\mu'$ / $\mu''$  where  $\mu''$  is the imaginary part of the complex permeability) of 1 or more, and a saturation magnetization of 5 kG or more.

J 2004/061876 A1

#### 添付公開書類:

一 国際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、 定期発行される 各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語 のガイダンスノート」を参照。

<sup>(57)</sup> 要約: 非磁性絶縁有機物材料からなるマトリックス3と、マトリックス3中に分散する平均粒径が50nm以下の強磁性金属粒子2とを含み、マトリックス3の体積比が5~50%であり軟磁気特性を有するグラニュラー物質1を提供する。このグラニュラー物質1は、膜状の形態を有する場合、1GHzにおける複素透磁率の実数部( $\mu$ ')が40以上で、かつ性能指数Q( $Q=\mu' / \mu''$  ,  $\mu'''$  : 複素透磁率の虚数部)が1以上、飽和磁化が5kG以上の特性を有する。

#### 明 細 書

#### グラニュラー物質、磁性薄膜、磁気素子

#### 5 技術分野

本発明は、非磁性絶縁有機物に強磁性金属微粒子を分散させたグラニュラー物質、特にグラニュラー薄膜に関する。

#### 背景技術

15

20

25

10 磁気素子の小型化、高性能化に伴い、高い飽和磁化を有し、かつGHzの高 周波数帯域における透磁率が高い磁性薄膜材料が求められている。

例えば、ワイヤレス送受信装置や携帯情報端末を中心に需要が高まっているモノリシックマイクロ波集積回路(MMIC)は、Si、GaAs、InPなどの半導体基板上に、トランジスタなどの能動素子と、線路、抵抗、キャパシタ、インダクタなどの受動素子とを、一括的かつ一体的に作製して構成される高周波集積回路である。

このようなMMICにおいては、受動素子、特にインダクタやキャパシタが能動素子に比べ、大きな面積を占めている。このような受動素子の大面積の占有は、結果として、高価な半導体基板の大量消費、すなわち、MMICのコストアップにつながる。従って、チップ面積を縮小し、MMICの製造コストを低減するために、受動素子が占める面積を縮小することが課題となっている。

MMICのインダクティブ素子としては平面型のスパイラルコイルが多く用いられている。そのスパイラルコイルの上下面、或いは片面に軟磁性薄膜を挿入し、インダクタンスを増加させる方法(換言すれば、小さな占有面積でも従来のインダクタンスが得られる方法)がすでに提案されている(例えば、J. Appl. Phys. 85,7919 (1999))。

しかしながら、磁性材料をMMICのインダクティブ素子へ応用するためには、先ず、GHzの高周波数帯域における透磁率が高く、かつ損失が少ない薄

20

膜磁性材料を開発することが求められている。さらには電気抵抗率が大きいことも求められている。

従来、高い飽和磁化を持つ磁性材料としてFeあるいはFeを主成分とする 微結晶または非結晶質合金が良く知られている。ところが、Fe系合金の磁性 膜をスパッタなどの成膜技術により作製すると、その膜の飽和磁化は高いもの の、保磁力が大きく、また、電気抵抗率が小さくなってしまい良好な高周波特 性を得ることは困難であった。

軟磁気特性が優れている材料として、Co系非結晶質合金が知られている。このCo系非結晶質合金は、Coを主成分としY, Ti, Zr, Hf, Nb, Ta などから選択される少なくとも1種の元素を含む非結晶質を主体とするものである。ところがゼロ磁歪組成のCo 系非結晶質合金の磁性膜をスパッタなどの成膜技術により作製すると、その膜の透磁率は大きいものの、飽和磁化が11kG(1.1T)程度であり、Fe 系に比べて小さい。さらに、100M Hz 程度の周波数およびこれを超えてから損失成分(複素透磁率の虚数部  $\mu$ ") が大きくなり、性能指数Q値が1以下となり、GHz の高周波帯域で使用する磁性材料としては好適とは言えない。

このような実情のもとに軟磁性薄膜の高周波特性を改良するために種々の提案がなされてきた。その改良の基本方針としては、渦電流損失を抑制させ、あるいは共鳴周波数を上昇させることなどが挙げられる。渦電流損失を抑制させる具体的な方策としては、グラニュラー薄膜の利用が提案されている(例えば、J. Appl. Phys. 79, 5130 (1996))。

グラニュラー構造の薄膜について言及すれば、非磁性物質からなる媒質中に 微細な強磁性粒子が分散した構造を有しており、非磁性金属-強磁性金属系お よび非磁性絶縁物-強磁性金属系が開発されている。

25 非磁性金属-強磁性金属系は、磁気抵抗効果を利用した磁気ヘッド材料(例えば、特許第2701743号公報)としての応用が可能である。一方、非磁性絶縁物-強磁性金属系の場合は、非磁性絶縁物の含有量によって磁気ヘッド材料(例えば、特許第3075332号公報)、高周波用インダクタ材料(例え

15

20

ば、J. Ceram. Soc. Japan, 110 (5), 432 (2002))、または、高周波用電波 吸収材料(特開2001-210518号公報、特開2002-158486 号公報)としての応用が可能である。

また、従来の磁気記録媒体分野においては、有機材料と強磁性体からなる複 合薄膜(例えば、特開昭61-178731号公報, 特公平3-77575号 公報)が開発されているものの、磁気記録媒体への応用に最適化されているた め、保磁力が数1000eと大きく、高透磁率を必要とする製品には応用でき なかった。

また、最近では、磁気記録媒体としてCoPtまたはFePt合金とフルオ 10 ロカーボン重合物の複合薄膜が報告されている(例えば、日本応用磁気学会誌 vol. 26, No. 4, 2002 第 280 頁~第 283 頁、日本応用磁気学会誌 vol. 27, No. 4, 2003 第336頁~第339頁)。しかしながら、保磁力が30000以上と大きく、高 周波用磁性材料としては応用が困難である。また、製造過程中に300~60 0℃の高温での熱処理を伴うため、基板の材質が限定されてしまうなどの不具 合もある。

従来、非磁性絶縁物ー強磁性金属系グラニュラー薄膜は、セラミックスの非 磁性絶縁物(酸化物、窒化物、フッ化物)と強磁性金属をスパッタ方法などで 同時に成膜することで得られている。しかし、従来のグラニュラー薄膜におい ては、成膜中に強磁性金属微粒子の表面が絶縁物と反応し、磁気特性が劣化す るために所望の磁気特性を得ることができないことがあった。また、このよう な薄膜は構成材料である無機材料が硬質で柔軟性に欠けているためフレキシブ ルな磁気素子への応用が困難であった。

このような実状のもとに本発明は創案されたものであり、その目的は、GH z帯域の高周波領域で高い透磁率を有し、かつ高い飽和磁化を有する高周波用 磁性薄膜として用いることのできるグラニュラー物質および磁性薄膜の提供を 25 目的とする。また、本発明は、そのような磁性薄膜を用いた磁気素子を提供す ることを目的とする。

#### 発明の開示

5

25

かかる目的のもと、本発明では、非磁性絶縁有機物材料からなるマトリックスと、マトリックス中に分散する平均粒径が50nm以下の強磁性金属粒子とを含むグラニュラー物質であって、マトリックスの体積比が5~50体積%であることを特徴とするグラニュラー物質を提供する。

本発明のグラニュラー物質において、強磁性金属粒子は、Fe、Coおよび Niから選択される少なくとも1種の元素を主体とする合金から構成されることが望ましい。

特に、強磁性金属粒子をFeおよびCoを主体とする金属から構成すること 10 により、高い飽和磁化を得ることができる。

この場合に、FeおよびCoを主体とする前記金属中のCoの濃度は10~50at%であることが望ましい。

本発明のグラニュラー物質では、強磁性金属粒子は互いに交換結合が働く距離だけ離間して存在することができる。

15 また本発明のグラニュラー物質において、マトリックスは、有機ポリマーから構成されることが望ましい。

グラニュラー物質におけるマトリックスの体積比は5~40%であることが 望ましい。

本発明のグラニュラー物質は、典型的には膜状の形態を有する。そしてその 20 場合、 $1\,\mathrm{GH}\,z$  における複素透磁率の実数部( $\mu$ ')が $4\,0\,\mathrm{以上}$ で、かつ性能 指数Q( $Q=\mu$ '/ $\mu$ ", $\mu$ ": 複素透磁率の虚数部)が $1\,\mathrm{以L}$ 、飽和磁化が  $5\,\mathrm{k}\,\mathrm{G}$ ( $0.5\,\mathrm{T}$ )以上の特性を有することができる。

本発明のグラニュラー物質によれば、 $1\,\mathrm{GH}\,\mathrm{z}$  における複素透磁率の実数部  $(\mu^{\prime})$  を $5\,\mathrm{0}$  以上、性能指数  $\mathrm{Q}$   $(\mathrm{Q}=\mu^{\prime}/\mu^{\prime\prime})$  ,  $\mu^{\prime\prime}$  : 複素透磁率の虚数部)を $5\,\mathrm{U}$  上、飽和磁化を $6\,\mathrm{k}\,\mathrm{G}$  以上とすることもできる。

また、本発明のグラニュラー物質は、電気抵抗率が  $100 \mu \Omega c m$ 以上の特性を有することができる。

また本発明によれば、面内磁気異方性を有し、膜厚が100~2000mm

の磁性薄膜であって、Fe、Co およびNi から選択される少なくとも1種の元素を主体とする平均粒径が50 nm以下の強磁性金属粒子と有機ポリマーとの混合物からなり、この混合物中において強磁性金属粒子が互いに交換結合が働く距離だけ離間して存在することを特徴とする磁性薄膜が提供される。

5 本発明の磁性薄膜において、強磁性金属粒子をFeおよびCoを主体とする 金属から構成することが望ましい。

また、強磁性金属粒子の平均粒径は5~15nmであることが望ましい。 本発明の磁性薄膜を構成する有機ポリマーとしては、ポリイミドまたは四フッ化エチレン(商品名:テフロン)が好適である。

- 10 さらに本発明によれば、高周波用磁性薄膜を有する磁気素子であって、この 高周波用磁性薄膜は、非磁性絶縁有機物材料からなるマトリックスと、マトリ ックス中に分散する平均粒径が50nm以下の強磁性金属粒子とを含み、マト リックスの体積比が5~50%であるグラニュラー物質から構成されることを 特徴とする磁気素子が提供される。
- 15 本発明の磁気素子において、強磁性金属粒子の平均粒径は5~30nmであることが望ましい。

また本発明の磁気素子において、強磁性金属粒子をFeおよびCoを主体とする金属から構成することが、高い飽和磁化を得る上で有効である。

本発明の磁気素子において、髙周波用磁性薄膜を構成するマトリックスは有 20 機ポリマーから構成することができる。

有機ポリマーとしてフルオロカーボン重合物を採用することで、高周波用磁性薄膜の電気抵抗率を 3 0 0  $\mu$   $\Omega$  c m以上とすることができる。

本発明の磁気素子において、高周波用磁性薄膜は、 $1\,\mathrm{GH}\,z$ における複素透磁率の実数部 ( $\mu$ ) が  $4\,0$ 以上で、かつ性能指数 Q (Q= $\mu$ ) / $\mu$ ",  $\mu$ ": 複素透磁率の虚数部) が  $1\,\mathrm{UL}$ 、飽和磁化が  $5\,\mathrm{k}\,\mathrm{G}$ 以上の特性を有することが望ましい。

#### 図面の簡単な説明

25

20

25

第1図は本発明によるグラニュラー物質の構造を模式的に示す図、第2図は蒸着重合法およびスパッタリング法を併用したグラニュラー薄膜形成装置(以下、「薄膜形成装置」ということがある)の一例を模式的に示す図、第3図はグラニュラー薄膜に形成される異方性を説明するための図、第4図はスパッタリング法を使用した薄膜形成装置の一例を模式的に示す図、第5図はプラズマ重合法およびスパッタリング法を併用した薄膜形成装置の一例を模式的に示す図、第6図は集積化インダクタの一例を示す平面図、第7図は第6図のAーA線断面図、第8図は第5実施例で得られた試料No.1~5の磁気特性等を示す図表、第9図は第5実施例で得られた試料No.1~4のX線回折パターン、第10図(a)は試料No.2のTEM(Transmission Electron Microscope:透過型電子顕微鏡)写真、第10図(b)は試料No.4のTEM写真、第11図は試料No.2の電子線回折パターンである。

#### 発明を実施するための最良の形態

15 以下に本発明の実施の形態について説明する。

第1図は、本実施の形態におけるグラニュラー物質1の構造を模式的に示す 図である。グラニュラー物質1は、強磁性金属粒子2が非磁性絶縁有機物材料 から構成されるマトリックス3に分散された構造を有している。このような構 造を有しているグラニュラー物質1は、典型的には薄膜として実用される。そ してこの薄膜は、軟磁気特性を有していること、および優れた高周波特性を有 していることが本発明の目的を達成する上で重要である。

軟磁気特性を得るために、強磁性金属粒子2は、平均粒径が50nm以下になっており各強磁性金属粒子2のスピンがランダムな向きをしていること、さらに強磁性金属粒子2同士の距離が交換結合が働く程度の距離になっていることが重要である。

強磁性金属粒子 2 として F e、C o および N i から選択される少なくとも 1 種の元素を主体とする金属を採用する。これにより、グラニュラー物質 1 の保磁力および飽和磁化を調整することができる。具体的には、純 F e、純 C o、

10

純Niのほか、FeCo系合金、FeNi系合金、CoNi系合金、FeCoNi系合金を用いることができる。なかでも、FeCo系合金が強磁性金属粒子2として望ましい。FeCo系合金の方がFeよりも高い飽和磁化が得られるからである。FeCo系合金中、Coの含有量は、80at%以下の範囲で適宜定めればよいが、10~50at%の範囲で含有させることが望ましい。

また、本発明の目的を害さない範囲で、Fe、CoおよびNi以外の金属元素または非金属元素を含有することを許容する。

ここで、強磁性金属粒子2の粒径が100nm以下の範囲において、保磁力は強磁性金属粒子2の粒径の6乗に比例する。つまり、強磁性金属粒子2の粒径を小さくすることにより、保磁力を低い値に規制することができる。そこで本発明のグラニュラー物質1は、強磁性金属粒子2の平均粒径を50nm以下に規制する。望ましい強磁性金属粒子2の平均粒径は30nm以下、より望ましくは5~30nmである。

軟磁気特性を得るために、強磁性金属粒子2同士の距離が交換結合が働く程度の距離になっていることが重要であることは上述の通りである。本発明では、強磁性金属粒子2同士の距離を、マトリックス3の体積比で調整することができる。マトリックス3の体積比が50%を超えると強磁性金属粒子2同士の距離が離れすぎて強磁性金属粒子2間の交換結合力が失われてしまう。そこで、本発明では、非磁性絶縁有機物材料から構成されるマトリックス3の体積比を50%以下とする。一方、マトリックス3の量が少ないと、後述する方法で得られたグラニュラー物質1において強磁性金属粒子2の粒径を小さくすることができなくなる。強磁性金属粒子2の平均粒径を本発明の範囲、つまり50nm以下とするためには、マトリックス3の体積比を5%以上とすることが望ましい。望ましいマトリックス3の体積比は5~40%、より望ましくは10~40%である。

マトリックス3を構成する非磁性絶縁有機物材料としては、公知の有機ポリマーを用いることができる。有機ポリマーとしては、合成樹脂重合体の他、これらの重合体を重合により生成する重合性のモノマー、オリゴマーを含む。例

15

えば、ヒドロキシエチルアクリレート、ヘキサンジオールジアクリレート、ネオペンケルグリコールジアクリレート、メチルーαークロロアクリレート、トリメチロールプロパントアクリレート、ジペンタオールへキサアクリレート、トリメチロールプロパントリジエチレングリコールアクリレート、ウレタンアクリレートなどのアクリル系モノマー或いはオリゴマーなど紫外線、電子線硬化型樹脂を用いることができる。また、マトリックス3を構成する有機ポリマーとして、ポリイミド、ポリテトラフロロエチレン(四フッ化エチレン)、ポリエチレンテレフタレート、ポリカーボネート、ポリパラキシレン、ポリプロピレン、ポリエチレン、ポリスチレン、トリフロロクロロエチレン、アリルトリフロロアセチレン、アジピン酸ーヘキサメチレンジアミンオリゴマー、シリコーン油を用いることができる。

有機ポリマーに代表される非磁性絶縁有機物材料によってマトリックス3を構成することにより、本発明のグラニュラー物質1は、無機材料をマトリックスとする従来のグラニュラー物質に比べて柔軟性に富み、機械的な応力が付与された場合でも割れ、欠け等の破損が生じにくいという耐応力性に優れることになる。

本発明によるグラニュラー物質1の典型的な形態として薄膜が掲げられることは上述の通りである。この薄膜は良好な高周波特性を有することが可能である。すなわち、グラニュラー物質1が上述したような軟磁気特性を有すること、 後述する方法によって得た薄膜には面内磁気異方性を付与することができることに加えて、マトリックス3を非磁性絶縁有機物材料から構成することにより高電気抵抗を実現して渦電流損失を軽減できるため良好な高周波特性を得ることを前提とすると、当該グラニュラー物質1の電気抵抗にもよるが、その厚さを50~2000nmの範囲とすることが望ましい。より望ましい膜厚は100~500nmである。

本発明によるグラニュラー物質1を用いた薄膜は、 $1 \, \mathrm{GHz}$  における複素透磁率の実数部 ( $\mu$ ) を  $4 \, \mathrm{0}$  以上、望ましくは  $5 \, \mathrm{0}$  以上、より望ましくは  $1 \, \mathrm{0}$  0以上、より一層望ましくは  $2 \, \mathrm{0}$  0以上とすることができる。そして、この薄

膜の性能指数Q( $Q=\mu^{'}/\mu^{''}$ )を1以上、望ましくは5以上、より望ましくは10以上とすることができる。なお、本発明において、これら特性は成膜したままの状態で得ることができる。つまり、成膜完了からの経過時間を問わないが、成膜後に例えば熱処理等の処理を加えていない状態で測定した値によって本発明で規定する特性を具備するか否かの判断を行うことができる。ただし、成膜後に熱処理等の処理を加えた場合であっても、本発明で規定する特性を具備するものは本発明の範囲に含まれることは言うまでもない。以下も同様である。

また本発明によるグラニュラー物質1を用いた薄膜は、飽和磁化が5kG(0.5T)以上、望ましくは6kG(0.6T)以上、より望ましくは10kG(1.0T)以上、さらに望ましくは15kG(1.5T)以上とすることができる。 さらに本発明によるグラニュラー物質1を用いた薄膜は、異方性磁界を200e(1591A/m)以上、望ましくは500e(3978A/m)以上、さらに望ましくは700e(5570A/m)以上の特性を得ることができる。

15 さらにまた本発明によるグラニュラー物質 1 を用いた薄膜は、電気抵抗率を  $100\mu\Omega$  c m以上、望ましくは  $150\mu\Omega$  c m以上、さらに望ましくは  $200\mu\Omega$  c m以上とすることができる。特に、マトリックス 3 を構成する非磁性 絶縁有機物材料としてフルオロカーボン重合物を用いた場合には、電気抵抗率 を  $300\mu\Omega$  c m以上、望ましくは  $500\mu\Omega$  c m以上、さらに望ましくは  $1000\mu\Omega$  c m以上とすることができる。

次に、本発明によるグラニュラー薄膜の製造に好適な方法について説明する。本発明のグラニュラー薄膜は、マトリックス3を構成する非磁性絶縁有機物材料と強磁性金属粒子2とを、同じ系内で同時に成膜処理することにより得ることができる。

25 非磁性絶縁有機物材料からなるマトリックス3の形成には従来公知の薄膜形成プロセスを適用することができる。例えば、蒸着重合法、プラズマ重合法、スパッタリング法およびレーザアブレーション法を適用することができる。

蒸着重合法は、ポリマーを構成するモノマーを各々加熱して蒸発させ、所定

15

20

25

の基板上にポリマーを蒸着重合させる方法である。プラズマ重合法は、モノマーをガス化してプラズマ放電により重合させる方法である。スパッタリング法は板状の非磁性絶縁有機物材料(例えばポリマー)をターゲット材としてスパッタリングにより薄膜を形成する方法である。レーザアブレーション法は、非磁性絶縁有機物材料にレーザ光を照射してアブレーションを生じさせて基板上に当該非磁性絶縁有機物材料を成膜する方法である。なお、アブレーションとは、局所的に発生する高温プラズマ状態からターゲット物質が飛散する現象をいう。

強磁性金属粒子2の形成についても従来公知の薄膜形成プロセスを適用する 10 ことができる。例えば、PVD (Physical Vapor Deposition:物理的蒸着法、 例えば、蒸着法、スパッタリング法、レーザアブレーション法など)、CVD (Chemical Vapor Deposition:化学的蒸着法)を適用することができる。

非磁性絶縁有機物材料からなるマトリックス3、強磁性金属粒子2の各々については、上述の成膜形成プロセスを適用するが、本発明では各々のプロセスを同時に行うことにより、上述のようなグラニュラー薄膜を形成する。その例を第2図~第5図に基づいて説明する。

第2図は、本発明によるグラニュラー薄膜を形成するための装置の構成概要を示している。この装置は、非磁性絶縁有機物材料から構成されるマトリックス3は蒸着重合により得ることができ、強磁性金属粒子2はスパッタリングにより得ることができるものである。

第2図において、薄膜形成装置は、真空容器10内の下部に有機物蒸発用セル11、12を備えている。有機物蒸発用セル11、12は、上部が開口したカップ状の形状をしており、薄膜形成時にはこの有機物蒸発用セル11、12 内に重合原料であるモノマーが収容される。有機物蒸発用セル11、12には、収容されたモノマーを所定の蒸発温度まで加熱するヒータ(図示せず)を付設している。

有機物蒸発用セル11、12の上部にはシャッタ13、14が各々配設されている。このシャッタ13、14は、有機物蒸発用セル11、12の開口部を

覆う位置(閉じる)と開放する位置(開く)との間を往復動する。第2図は、シャッタ13、14を閉じた状態を示している。有機物蒸発用セル11、12 内に収容されたモノマーが蒸発しているときに、その蒸発物を飛散させたくない場合にはシャッタ13、14を閉じ、飛散させたいときにはシャッタ13、14を開く。

有機物蒸発用セル11、12の間には、ターゲット載置台15が配設されており、このターゲット載置台15上にターゲット16が載置される。このターゲット16は、強磁性金属粒子2を形成するためのものである。ターゲット16にDC/RF電源(図示せず)から所定の電力を印加することにより、ター10ゲット16に対して高速でイオンを衝突させる。高速でイオンが衝突したターゲット16の表面からターゲット16を構成する元素の分子または原子がたたき出される。ターゲット16は、強磁性金属粒子2と実質的に同一組成の合金ターゲット、強磁性金属粒子2を構成する元素からなる単一組成ターゲット、単一組成ターゲットの組み合わせ、単一組成ターゲットと合金ターゲットとの組み合わせ等種々の形態を適用することができる。ターゲット載置台15の上部(ターゲット16の上部)にはシャッタ18が配設されている。シャッタ18の動作はシャッタ13、14と同様である。

真空容器10の上部には、基板19、基板19を所定の温度に加熱するヒータ20が配設されている。基板19の図中下面側が膜形成面である。つまり、20 有機物蒸発用セル11、12内から蒸発したモノマーは基板19の膜形成面に堆積しつつポリマーに重合され、かつターゲット16からたたき出された金属原子が基板19の膜形成面に堆積する。スパッタリング、およびモノマーの蒸発を同時に行うことにより、ポリマーをマトリックス3とし、このマトリックス3中に分散する微細な強磁性金属粒子2とを含むグラニュラー薄膜を形成することができる。

基板19に形成されるグラニュラー薄膜に磁気的な異方性を付与するために、 基板19の周囲には一対の永久磁石21、22が配設されている。永久磁石2 1のN極から永久磁石22のS極へと磁束が流れるため、基板19の下面側(膜

形成面)に形成されるグラニュラー薄膜に磁気的な異方性を付与することができる。

第3図は、グラニュラー薄膜に形成される磁気的な異方性を説明するための 平面図である。第3図中、x方向に磁化容易軸が形成され、x方向と直行する y方向に磁化困難軸が形成される。なお、第2図に示した矢印は、磁化容易軸 となる方向を示している。

第4図は、非磁性絶縁有機物材料からなるマトリックス3および強磁性金属 粒子2の両者をスパッタリングにより得ることのできる薄膜形成装置の構成概 要を示している。

10 第4図の薄膜形成装置は、真空容器30内の下部にターゲット載置台31、 32が所定間隔隔でて配設されている。このターゲット載置台31、32上に は各々ターゲット33、34が載置される。2つのターゲット33、34のう ち、一方が非磁性絶縁有機物材料からなるマトリックス3を形成するためのも の、他方が強磁性金属粒子2を形成するためのものである。このターゲット3 3,34に対してDC/RF電源(図示せず)から所定の電力を印加すること 15 により、ターゲット33,34に対して高速でイオンを衝突させる。高速でイ オンが衝突したターゲット33,34の表面からターゲット33,34を構成 する元素の分子または原子がたたき出される。ここで、非磁性絶縁有機材料用 のターゲットへはRF電力を供給することが望ましい。マトリックス3形成用 のターゲット33 (34) の形態には特に制限はなく、例えば板状に形成され 20 たポリマーからなる形態、粉状のポリマーを板状基板上に圧延展開させた形態 等を採用することができる。強磁性金属粒子2形成用のターゲット33(34) は、前述した通りである。なお、シャッタ37、38は、上述したシャッタ1 3、14と同様に機能する。また、永久磁石21a、22aは、上述した永久 磁石21、22と同様に、基板39の表面(膜形成面)に形成されるグラニュ 25 ラー薄膜に磁気的な異方性を付与するために機能する。

第4図の薄膜形成装置において、シャッタ37、38を開けた状態でターゲット33,34に所定の電力を印加することによりマトリックス3を形成する

非磁性絶縁有機物材料がスパッタリングされると同時に強磁性金属粒子2を形成する強磁性金属がスパッタリングされる。スパッタリングされた非磁性絶縁有機物材料および強磁性金属が、ヒータ40により所定温度に加熱された基板39の膜形成面に堆積されることにより、薄膜状のグラニュラー物質1を形成する。

第5回は、非磁性絶縁有機物材料からなるマトリックス3をプラズマ重合法により得ることができ、強磁性金属粒子2をスパッタリングにより得ることのできる薄膜形成装置の構成概要を示している。

第5図の薄膜形成装置は、真空容器50内の側部に電極51、52が所定距離 70 離隔でて対向するようにして配設されている。電極51上にはターゲット55を備えた永久磁石53が、電極52上にはターゲット56を備えた永久磁石54が、それぞれ載置される。この永久磁石53、54の存在により、基板59上に形成されるグラニュラー薄膜に磁気的な異方性が付与される。ターゲット55、56はいずれも強磁性金属粒子2を形成するためのものである。このターゲット55、56に対してDC/RF電源(図示せず)から所定の電力を印加することにより、ターゲット55、56に対して高速でイオンを衝突させる。高速でイオンが衝突したターゲット55、56の表面からターゲット55、56を構成する元素の分子または原子がたたき出される。なお、強磁性金属粒子2形成用のターゲット55、56の形態等は前述した通りである。

20 真空容器 5 0 の上部には基板 5 9、ならびに基板 5 9 を所定の温度に加熱するヒータ 6 0 が配設されている。基板 5 9 の図中下面側が膜形成面である。

さて、第5図に示す薄膜形成装置では、スパッタリングガスと共にフルオロカーボン系ガスをフローさせることにより、ターゲットのスパッタリング現象およびプラズマ重合反応を同時に利用することが可能である。すなわち、ガス 導入部61からAr等のスパッタリングガスおよびフルオロカーボン系ガスが同時に導入され、発生されたプラズマ70の中にはターゲット55、56からたたき出された金属粒子とフルオロカーボン系プラズマ重合物が混在する状態をつくり、基板59の膜形成面に集積させる。このように、フルオロカーボン

系ガスを導入しながらスパッタリングを行うことにより、プラズマ重合物をマトリックス3とし、このマトリックス3中に分散する微細な強磁性金属粒子2とを含むグラニュラー薄膜を形成することができる。なお、フルオロカーボン系ガスの分圧を制御することで、グラニュラー薄膜中に生成されるマトリックス3の量を制御することができる。

5

10

フルオロカーボン系ガスとしては、 $C_2F_4$ および $C_4F_8$ からなる群より選択された一元気体源を使用することができる。または、F/C比の高いフルオロカーボン系ガスの一種(例えば、 $C_2F_6$ 、 $CF_4$ )と、F/C比を低下させるガスとを含む二元気体源を使用することができる。なお、プラズマ70に、 $H_2$ 、 $O_2$ 又は $N_2$ を導入することにより、グラニュラー薄膜に所望の機械的特性及び物理的特性を付与することもできる。

プラズマ重合反応により、フルオロカーボン系ガスはフルオロカーボン重合物となる。フルオロカーボン重合物の代表的な重合物としては四フッ化エチレンが挙げられる。

15 なお、第5図の薄膜形成装置では、基板59の下方にシャッタ62が配設されている。このシャッタ62は、基板59の膜形成面を覆う位置(閉じる)と開放する位置(開く)との間を往復動する。第5図は、シャッタ62を閉じた状態を示している。ターゲット55,56の表面からターゲット55,56を構成する元素の分子または原子がたたき出されているときに、その分子または20 原子を基板59の膜形成面に被着させたくない場合にはシャッタ62を閉じ、被着させたいときにはシャッタ62を開く。シャッタ62の動作を制御することで、グラニュラー薄膜の厚さを制御することができる。

また、第5図には対向ターゲット式装置を基本とした薄膜形成装置を示したが、他の形式のスパッタ装置を改良してグラニュラー薄膜を得ることも可能で 25 ある。例えば第2図に示した薄膜形成装置で、蒸着重合法に代えてプラズマ重 合法を適用することができる。つまり、第2図に示した薄膜形成装置にてモノマーガスをフローさせつつ同時にスパッタリングを行うことにより、プラズマ 重合物をマトリックス3とし、このマトリックス3中に分散する微細な強磁性

10

15

金属粒子2とを含むグラニュラー薄膜を形成することもできる。

本発明のグラニュラー薄膜は、モノリシックマイクロ波集積回路(MMIC)のような半導体プロセスで製作される高周波集積回路に最適な材料である。したがって、本発明のグラニュラー薄膜が形成される基板としては、Si、GaAs、InP、SiGeなどの半導体基板が例示できる。また、本発明のグラニュラー薄膜は様々なセラミックス材料や樹脂基板上に成膜することも可能である。

MMIC用インダクティブ素子として応用した例を第6図および第7図に示す。第6図はインダクタの導体層部分を抜き出した平面図を模式的に示したものであり、第7図は第6図のA-A線断面を模式的に示した図面である。

これらの図面で示しているインダクタ110は、第7図に示されるように基板111と、この基板111の上に必要に応じて形成される酸化絶縁膜112と、この酸化絶縁膜112の上に形成された本発明によるグラニュラー薄膜101aと、このグラニュラー薄膜101aの上に形成された絶縁膜113を備え、さらにこの絶縁膜113の上に形成されたスパイラルコイル114と、このスパイラルコイル114と絶縁膜113を覆うように形成された絶縁膜115と、この絶縁膜115の上に形成された本発明によるグラニュラー薄膜101bとを有している。

また、スパイラルコイル114は、第6図に示されるように、配線116を介20 して一対の電極117に接続されている。そして、スパイラルコイル114を囲むように設けられたグラウンドパターン119は、それぞれ一対のグラウンド電極118に接続され、グラウンドーシグナルーグラウンド(G-S-G)タイプのプローブにより、ウェハ上で周波数特性を評価する形状を有する。

本実施の形状にかかるMMIC用インダクティブ素子 (インダクタ110) に おいては、磁芯となるグラニュラー薄膜101a、101bによってスパイラルコイル114が挟み込まれた有芯構造を採用しているため、スパイラルコイル114が同じ形状でありながらもグラニュラー薄膜101a、101bが形成されていない空芯構造のインダクティブ素子に比べ、インダクタンス値が約50%向

上される。したがって、同じインダクタンス値を得るために必要なスパイラルコイル114の占有面積は小さくてもよいことになり、その結果としてスパイラルコイル114の小型化が実現される。

ところで、MMIC用インダクティブ素子に適用するグラニュラー薄膜の材料としては、GHz帯域の高周波数で高透磁率、かつ高い性能指数Q(低損失)特性を持つことや、半導体製造プロセスによる集積化が可能であることが求められる。

GHz帯域の高周波数における高透磁率を実現するためには、共鳴周波数が高く、かつ飽和磁化が大きい材質が有利であり、一軸磁気異方性の制御が必要である。また、高い性能指数Qを得るためには、高抵抗化による渦電流損失の抑制が重要である。さらに、集積化プロセスに適用するためには、室温で成膜でき、成膜ままの状態(熱処理等の処理を加えていない状態)で使用できることが望ましい。すでにセッティングされている他のオンチップコンポーネントの性能および作製プロセスに影響を及ぼさないようにするためである。

#### 15 (実施例)

5

10

25

次に、具体的な実施例を挙げて本発明をさらに詳細に説明する。

#### <第1実施例>

第2図に示した薄膜形成装置を用いてグラニュラー薄膜の形成を行った。

非磁性絶縁有機物材料からなるマトリックスとしてポリイミドを形成するた 20 め、原料モノマーとして、無水ピロメリト酸(以下、PMDA)と、4,4'ージアミノジフェニルメタン(以下、ODA)を用いた。なお、PMDAを有機物 蒸発用セル11に、またODAを有機物蒸発用セル12に収容した。

また、強磁性金属としては $Fe_{69}Co_{31}$ (a t %)合金を採用した。そのために $Fe_{69}Co_{31}$ (a t %)合金ターゲットを作製し、このターゲット16をターゲット載置台15上に配置した。

グラニュラー薄膜を形成する基板 19 としては、Si(100) ウェハの上に  $SiO_2$ を 500 nmの厚さに成膜した基板 19 を用いた。なお、 $SiO_2$ 膜が 形成された面が薄膜形成面となる。

20

25

先ず、真空容器  $10 \times 8 \times 10^{-6}$  Paまで予備排気後、真空容器 10 内の圧力が 0.2 PaになるようにArガスを流入した。シャッタ 18 を閉じた状態で、DC電極を介して 200 WのDCパワーをFe<sub>69</sub> Co<sub>31</sub> (at%) 合金からなるターゲット 16 に印加してスパッタリングを行った。同様にシャッタ 13、14 を閉じた状態で、PMDAが収容された有機物蒸発用セル  $11 \times 130$  C、ODAが収容された有機物蒸発用セル  $12 \times 120$  Cになるように加熱した。基板 190 周囲には一対の永久磁石 21、22 を配置し、基板 190 の中心に 100 e以上の磁界を印加し、基板 190 の温度を 150 Cに保持した。

所定時間経過後にシャッタ 13, 14 および 18 を同時に開くことで PMDA、 ODA の蒸発物およびターゲット 16 から放出されたスパッタリング粒子が基板 19 に向けて進行する。なお、強磁性金属粒子を構成する  $Fe_{69}Co_{31}$  は、単層膜を形成したとするときの成膜速度が 1.2 nm (12Å) / sec となるようにスパッタリングした。また、PMDA、ODA については、ポリイミドの単層膜を形成したとするときの成膜速度が 0.3 nm (3Å) / sec となるように有機物蒸発用セル 11、12 の加熱温度等を制御した。この条件下で、グラニュラー薄膜の厚さが 450 nmになるように 5 分間成膜を行った。

得られたグラニュラー薄膜は、成膜速度から換算すると強磁性金属粒子の体積 比は80%、マトリックスの体積比は20%である。また、X線回折パターンか らは平均粒径7 nmのbcc構造の微細な強磁性金属粒子が形成されているこ とを確認した。

得られたグラニュラー薄膜について磁気的な特性を測定したところ、面内一軸磁気異方性が観察された。また、飽和磁化として13.3kG (1.33T)、保磁力として3.50e (278A/m)、異方性磁界として750e (5968A/m)の値が得られた。共鳴周波数は測定限界の2GHzを超えており、GHzで通域で透磁率の実数部 ( $\mu$ ')が $200以上、性能指数Q(Q=<math>\mu$ '/ $\mu$ ")は1GHzで10の値が得られた。また、電気抵抗率は $260\mu\Omega$ cmであった。<第2実施例>

強磁性金属をFeに変えた以外は第1実施例と同様にしてグラニュラー薄膜

を得た。第1実施例と同様に磁気的特性を測定したところ、飽和磁化として12.  $1 \, \mathrm{k} \, \mathrm{G} \, (1.21 \, \mathrm{T})$ 、保磁力として4.0  $\mathrm{O} \, \mathrm{e} \, (318 \, \mathrm{A/m})$ 、異方性磁界として70  $\mathrm{O} \, \mathrm{e} \, (55704 \, \mathrm{A/m})$  の値が得られた。共鳴周波数は測定限界の2 GHzを超えており、GHz領域で透磁率の実数部 ( $\mu$ ') が200以上、性能指数Q ( $\mathrm{Q} = \mu$ '/ $\mu$ ") は $\mathrm{1} \, \mathrm{GHz} \, \mathrm{T} \, \mathrm{ct} \, \mathrm{120} \, \mathrm{m}$  が300以上、電気抵抗率は250  $\mu$   $\Omega$   $\mathrm{c}$   $\mathrm{m}$   $\mathrm{c}$   $\mathrm{m}$   $\mathrm{c}$   $\mathrm{m}$   $\mathrm{c}$   $\mathrm{c}$ 

#### <第3実施例>

5

モノマーとして、4,4'ージフェニルメタンジイソシアナートとベンゼンテトラカルボン酸二無水物を使用し、4,4'ージフェニルメタンジイソシアナー10 トを投入した有機物蒸発用セル11を70℃、ベンゼンテトラカルボン酸二無水物を投入した有機物蒸発用セル12を140℃になるように加熱し、基板19を加熱しない以外は、第1実施例と同様にしてグラニュラー薄膜を作製した。なお、4,4'ージフェニルメタンジイソシアナートおよびベンゼンテトラカルボン酸二無水物については、ポリイミドの単層膜を形成したとするときの成膜速度が0.

15 125 n m/s e c (1.25 Å/s e c)となるように有機物蒸発用セル11、12の加熱温度等を制御した。

得られたグラニュラー薄膜における強磁性金属粒子の体積比は90%、マトリックスの体積比は10%である。X線回折パターンから、平均粒径10nmのも c c 構造の微細な強磁性金属粒子が形成されていることを確認した。得られたグラニュラー薄膜では面内一軸磁気異方性が観察されており、飽和磁化として17. 5 k G (1.75 T)、保磁力として2.5 O e (198 A/m)、異方性磁界として10 O e (5570 4 A/m) の値が得られた。共鳴周波数は測定限界の2 GHzを超えており、2 GHz 領域で透磁率の実数部  $(\mu')$  が250 以上、性能指数2 Q 2 C mであった。

#### <第4実施例>

第4図に示した薄膜形成装置を用いてグラニュラー薄膜の形成を行った。 非磁性絶縁有機物材料からなるマトリックスとして四フッ化エチレン(商品

20

25

名:テフロン、以下PTFE)を用いた。そのためのターゲットして直径100 mm、厚さ2mmのPTFE板を用意した。強磁性金属は第1実施例と同様であ り、FeCo合金ターゲットを用意した。PTFEターゲットおよびFe-Co 合金ターゲットをターゲット載置台31、32上に配置した。なお、基板39と しては第1実施例と同様にSi(100)ウェハの上にSiО₂を500nmの 厚さに成膜した基板39を用いた。

真空容器30を8×10<sup>-5</sup>Paまで予備排気後、真空容器30内の圧力が0. 4PaになるようにArガスを流入した。シャッタ37、38を閉めた状態でD C/RF電源を介して300WのRFパワーをPTFEターゲットおよびFe -Co合金ターゲットに印加し、5分間の予備スパッタリングを行った。予備ス 10 パッタリング終了後、シャッタ37、38を同時に開け、基板39にPTFEと FeCo合金を同時に集積させることによりグラニュラー構造の薄膜を形成し た。なお、FeCo合金の単層膜を形成したとするときの成膜速度は0.08 n m/sec(0.8Å/sec)であり、PTFEの単層膜を形成したとすると きの成膜速度は0.01nm/sec(0.1Å/sec)である。この条件下 15 で、グラニュラー薄膜の厚さが430mmになるように80分間成膜を行った。 得られたグラニュラー薄膜は、成膜速度から換算した強磁性金属粒子の体積比 は88%、マトリックスの体積比は12%である。また、X線回折パターンから は平均粒径9 n m の b c c 構造の微細な強磁性金属粒子が形成されていること を確認した。

得られたグラニュラー薄膜について磁気的な特性を測定したところ、面内一軸 磁気異方性が観察された。また、飽和磁化として17.3kG(1.73T)、 保磁力として5.80e(461A/m)、異方性磁界として750e(596 8A/m)の値が得られた。共鳴周波数は測定限界の2GHzを超えており、G Hz 領域で透磁率の実数部( $\mu$ ')が 200 以上、性能指数 Q(Q= $\mu$ '/ $\mu$ ") は $1\,\mathrm{GHz}$ では $1\,5\,\mathrm{O}$ 値が得られた。また、電気抵抗率は $1\,0\,0\,\mu\,\Omega\,\mathrm{c}\,\mathrm{m}$ である。 <第5実施例>

第5図に示した薄膜形成装置を用いてグラニュラー薄膜の形成を行った。

10

非磁性絶縁有機物材料からなるマトリックスを形成するためのフルオロカーボン系ガスとして $C_4F_8$ ガスを用いた。また、キャリアガスとして $A_1$  ガスを用いた。強磁性金属は第1実施例と同様であり、 $F_1$  e  $C_2$  o 合金ターゲットを用意した。 $F_2$  e  $C_3$  o 合金ターゲットをターゲットをターゲット載置台51、52上に配置した。なお、基板59としては第1実施例と同様に $S_1$  (100) ウェハの上に $S_1$  O  $C_2$  を500 n m の厚さに成膜した基板59を用いた。

真空容器  $50 \times 8 \times 10^{-5}$  Paまで予備排気後、ガス導入部 61 から  $C_4$  F<sub>8</sub> ガスとキャリアガス (Arガス) とを導入し、全体のガス圧が 8 m Torrになるように調整した。その際、 $C_4$  F<sub>8</sub> ガス分圧は  $0 \sim 1$ . 0 m Torrの範囲で変化させた。

電極  $5\,1$ 、 $5\,2$ を介して  $3\,0\,0$  WのR Fパワーを Fe - Co合金からなるターゲット  $5\,3$ 、 $5\,4$  に印加し、5 分間の予備スパッタリングを行った。この予備スパッタリングはシャッタ  $6\,2$  を閉めた状態で行った。

次にシャッタ62を開け、基板59にフルオロカーボン重合物とFeCo合金を同時に集積させることによりグラニュラー構造の薄膜を形成した。なお、FeCo合金の単層膜を形成したとするときの成膜速度は0.15nm/sec(1.5A/sec)であり、FeCo合金とフルオロカーボン重合物からなるグラニュラー薄膜を形成したとするときの成膜速度は0.25nm/sec(2.5A/sec)である。この条件で、グラニュラー薄膜の厚さが300nmになるように20分間成膜を行い、第8図に示す5種類の薄膜(試料No.1~5)を得た。得られた薄膜について磁気的な特性を測定した。その結果を第8図に示す。

第8図から、 $C_4F_8$ ガス分圧を変化させることで、飽和磁化( $B_8$ )および電気抵抗( $\rho$ )が変動することがわかる。 $C_4F_8$ ガス分圧が0mTorr (試25 料No. 1)では飽和磁化( $B_8$ )は高いが、 $100\mu\Omega$ cm以上という高い電気抵抗率( $\rho$ )を得ることはできない。一方、 $C_4F_8$ ガス分圧を $0.4\sim1.0$ mTorrとした本発明の試料No.  $2\sim5$ によれば、0.5 T (5.0 k G)以上の飽和磁化( $B_8$ )および $400\mu\Omega$ cm以上の電気抵抗率( $\rho$ )を

10

15

兼備することができる。また本発明の試料No.  $2\sim5$ は、保磁力(Hce: 磁化容易軸方向の保磁力)として14.  $3\sim22$ . 6 Oe ( $1138\sim180$  OA/m)、保磁力(Hch: 磁化困難軸方向の保磁力)として7.  $1\sim14$ . 5 Oe ( $565\sim1154$ A/m)という良好な特性も示した。共鳴周波数は 2 GHzを超えており、GHz領域で透磁率の実数部( $\mu$ ')は5 O以上、性能指数Q( $Q=\mu$ '/ $\mu$ ")は1 GHzでは1 以上の値が得られた。また、本発明の試料No.  $2\sim5$  は面内一軸磁気異方性が観察された。

なお、第8図にはマトリックス体積比も示した。このマトリックス体積比は、 飽和磁化 (Bs) の値に基づき、有機物 (フルオロカーボン重合物) の体積比 (vol%) を算出したものである。

第9図は、試料No.  $1\sim 4$ のX線回折パターンを示している。第9図に示すように、 $C_4F_8$ ガス分圧(第9図には $Pc_4F_8$ と表記)が0mTorrの場合(試料No. 1)には、 $C_0F_0$ のシャープなピークが観察された。一方、 $C_4F_8$ ガス分圧が0. 4mTorr (試料No. 2)になると $C_0F_0$ のシャープなピークが消失する。 $C_4F_8$ ガス分圧が0. 6mTorrの場合(試料No. 3)、 $C_4F_8$ ガス分圧が0. 8mTorrの場合(試料No. 4)には $C_0F_0$ のピークはほとんど観察されなかった。

第10図(a)は試料No. 2(C<sub>4</sub>F<sub>8</sub>ガス分圧: 0.4mTorr)のTEM写真、第10図(b)は試料No. 4(C<sub>4</sub>F<sub>8</sub>ガス分圧: 0.8mTor r)のTEM写真である。第10図(a)と第10図(b)との比較から、C<sub>4</sub>F<sub>8</sub>ガス分圧が0.8mTorrである試料No.4の方が、試料No.2(C<sub>4</sub>F<sub>8</sub>ガス分圧: 0.4mTorr)よりも、微結晶化が一層進んでいることが確認できた。試料No.2の平均結晶粒径は19nm、試料No.4の平均結晶粒径は8nmであり、実測値でも試料No.4の方が試料No.2よりも微結晶25であることが確認できた。

また後述する電子線回折パターン(第11図)から、第10図(a)、第10図(b)中、粒子間の白い部分はマトリックスを構成する有機ポリマーを示し、 それ以外の部分は強磁性金属粒子を示していることが確認できた。粒子と粒子と の間に形成されるフルオロカーボン重合物の幅は、試料No. 2において約2 n mであり、試料No. 3においては2~5 n mである。

第11図に試料No.2の電子線回折パターンを示す。第11図に示すように、 (110)、(200)、(211)、(220) に対応する個所に、くっきりとした 回折線が観察された。これはCoFeからの回折を示している。

また、(110)、(200)、(211)、(220) に対応する以外の個所からも、回折線が観察された。X線回折カードJCPDS (Joint Committee of Powder Diffraction Standard) を用いた評価の結果、その回折線はX線回折カードJCPDS 27-1837の回折パターンと合致しており、フルオロカーボン重合物からの回折であることがわかった。つまり、FeCoからの回折ならびにフルオロカーボン重合物からの回折が同時に観察されたことから、試料No.2においてFeCoとフルオロカーボン重合物との混合状態が形成されていることが明らかとなった。これにより、第10図(a)および第10図(b)に示した構造、すなわち、有機ポリマー中に強磁性金属粒子が分散されている構造がグラニュラー構造であることが確認できた。

#### 産業上の利用可能性

20

本発明によれば、GHz帯域の高周波領域で高い透磁率を有し、かつ高い飽和磁化を有する高周波用磁性薄膜として用いることのできるグラニュラー物質およびグラニュラー薄膜が提供される。

#### 請求の範囲

1. 非磁性絶縁有機物材料からなるマトリックスと、

前記マトリックス中に分散する平均粒径が50nm以下の強磁性金属粒子5・とを含むグラニュラー物質であって、

前記マトリックスの体積比が $5\sim50\%$ であることを特徴とするグラニュラー物質。

- 2. 前記強磁性金属粒子は、Fe、CoおよびNiから選択される少なくとも 10 1種の元素を主体とする金属から構成されることを特徴とする請求項1に記載 のグラニュラー物質。
  - 3. 前記強磁性金属粒子は、FeおよびCoを主体とする金属から構成されることを特徴とする請求項1に記載のグラニュラー物質。

15

- 4.  $Fe および Co を主体とする前記金属中の Coの濃度が <math>10 \sim 50 at\%$ であることを特徴とする請求項 3 に記載のグラニュラー物質。
- 5. 前記強磁性金属粒子が互いに交換結合が働く距離だけ離間して存在するこ 20 とを特徴とする請求項1に記載のグラニュラー物質。
  - 6. 前記マトリックスは、有機ポリマーから構成されることを特徴とする請求 項1に記載のグラニュラー物質。
- 25 7. 前記マトリックスの体積比が 5 ~ 40% であることを特徴とする請求項 1 に記載のグラニュラー物質。
  - 8. 前記グラニュラー物質は膜状の形態を有し、1GHzにおける複素透磁率

の実数部  $(\mu^{\prime})$  が 40 以上で、かつ性能指数  $Q(Q=\mu^{\prime}/\mu^{\prime\prime})$  ,  $\mu^{\prime\prime}$  : 複素透磁率の虚数部)が 1 以上、飽和磁化が 5 k G以上の特性を有することを特徴とする請求項 1 に記載のグラニュラー物質。

- $9.1\,\mathrm{GHz}$  における複素透磁率の実数部( $\mu$ ')が50以上であることを特徴とする請求項8に記載のグラニュラー物質。
  - 10. 性能指数Q( $Q=\mu^{\prime}/\mu^{\prime\prime}$ ,  $\mu^{\prime\prime}$ : 複素透磁率の虚数部)が 5以上であることを特徴とする請求項 8 または 9 に記載のグラニュラー物質。
  - 11. 飽和磁化が6kG以上の特性を有することを特徴とする請求項8または9に記載のグラニュラー物質。
- 12. 電気抵抗率が  $100\mu\Omega$  c m以上の特性を有することを特徴とする請求 15 項 1 に記載のグラニュラー物質。
  - 13. 面内磁気異方性を有し、膜厚が100~2000nmの磁性薄膜であって、

前記磁性薄膜は、

20 Fe、CoおよびNiから選択される少なくとも1種の元素を主体とする平均粒径が50nm以下の強磁性金属粒子と有機ポリマーとの混合物からなり、

前記混合物中において前記強磁性金属粒子が互いに交換結合が働く距離だけ離間して存在することを特徴とする磁性薄膜。

- 25 14. 前記強磁性金属粒子は、FeおよびCoを主体とする金属から構成されることを特徴とする請求項13に記載の磁性薄膜。
  - 15. 前記強磁性金属粒子の平均粒径は5~15 nmであることを特徴とする

WO 2004/061876 PCT/JP2003/016097

- 25 -

請求項13に記載の磁性薄膜。

16. 前記有機ポリマーはポリイミドであることを特徴とする請求項13に記載の磁性薄膜。

5

17. 高周波用磁性薄膜を有する磁気素子であって、

前記高周波用磁性薄膜は、

非磁性絶縁有機物材料からなるマトリックスと、

前記マトリックス中に分散する平均粒径が50nm以下の強磁性金属粒子と10 を含み、

前記マトリックスの体積比が5~50%であるグラニュラー物質から構成されることを特徴とする磁気素子。

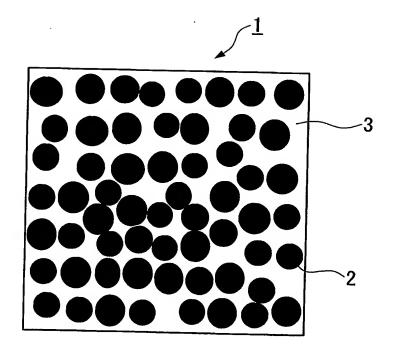
- 18. 前記強磁性金属粒子の平均粒径は5~30nmであることを特徴とする 15 請求項17に記載の磁気素子。
  - 19. 前記強磁性金属粒子は、FeおよびCoを主体とする金属から構成されることを特徴とする請求項17に記載の磁気素子。
- 20 20. 前記マトリックスは有機ポリマーから構成されることを特徴とする請求 項17に記載の磁気素子。
  - 21. 前記有機ポリマーはフルオロカーボン重合物であり、

前記高周波用磁性薄膜の電気抵抗率が  $300\mu\Omega$  c m以上であることを特徴 25 とする請求項 20 に記載の磁気素子。

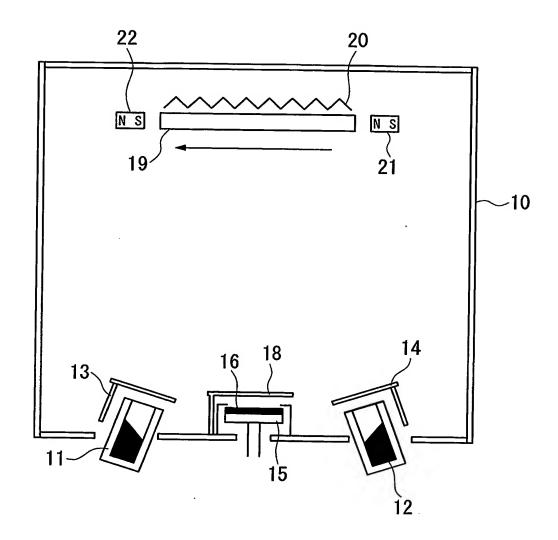
22. 前記高周波用磁性薄膜は、 $1\,\mathrm{GH}\,z$  における複素透磁率の実数部( $\mu$ ')が  $4\,0$ 以上で、かつ性能指数 Q(Q= $\mu$ '/ $\mu$ ",  $\mu$ ": 複素透磁率の虚数

部)が1以上、飽和磁化が5kG以上の特性を有することを特徴とする請求項項17に記載の磁気素子。

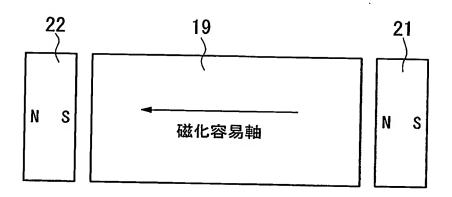
第1図



## 第2図

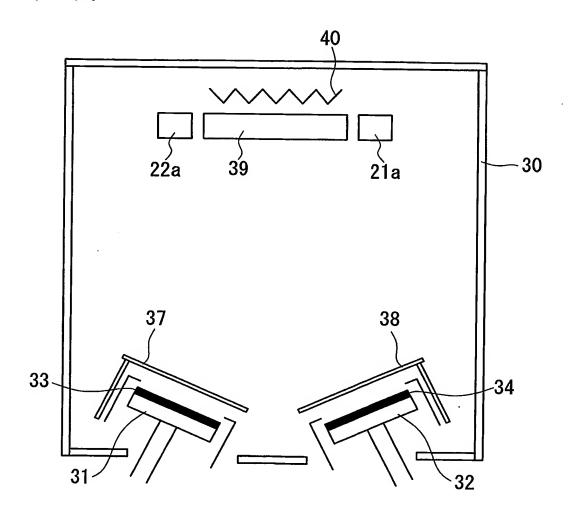


# 第3図

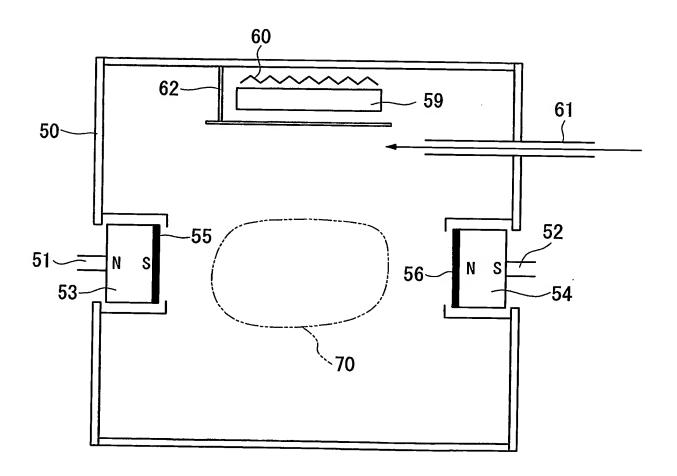




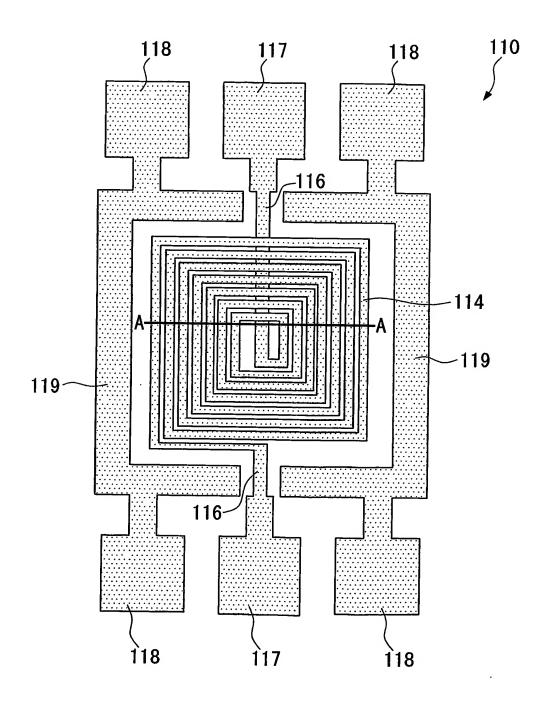
第4図



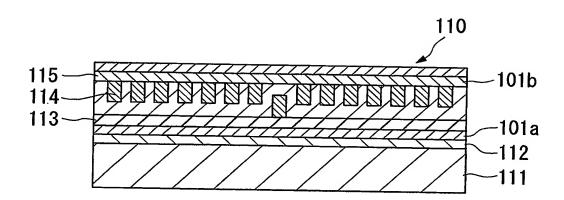
# 第5図



第6図



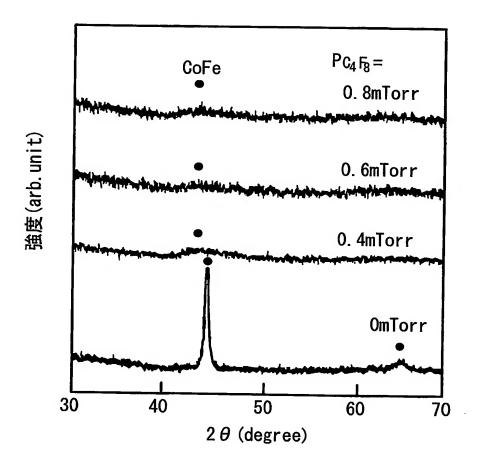
第7図



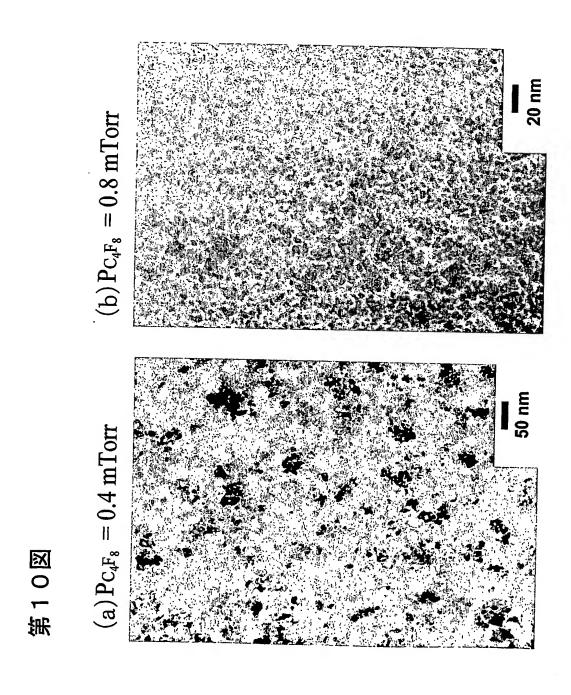
|                 | 福米                 | (at 1GHz) |       |        |                         |   |
|-----------------|--------------------|-----------|-------|--------|-------------------------|---|
| 高周波透磁率特性        | μ"<br>(at 1GHz)    |           | ı     | - 7    | 15 15                   | 15 15 10                                  |
| 高周波透            | μ'<br>(at 1GHz)    |           | ı     | 100    | -<br>001<br>07          | <br>100<br>70<br>50                       |
|                 | 共鳴<br>周波数<br>(GHz) |           | >>2.0 | >>2.0  | >>2.0<br>>>2.0<br>>>2.0 | >>2.0<br>>>2.0<br>>>2.0<br>>>2.0<br>>>2.0 |
| <del>41</del> 1 | Hch<br>(0e)        |           | 35.0  |        |                         |   |
| 磁気特性            | Hce<br>(Oe)        |           | 144.0 | 144.0  | 16.5                    | 144.0<br>16.5<br>16.0<br>22.6             |
|                 | Bs<br>(T)          |           | 2.20  | 2.20   | 2.20<br>1.25<br>0.94    | 2.20<br>1.25<br>0.94<br>0.61              |
| <u></u>         | (µ Q cm)           |           | 09    | 60 440 | 60<br>440<br>790        | 60<br>440<br>790<br>2190                  |
| マトリック           | A体模比<br>(vol%)     |           | 0     | 0 10   | 10                      | 10 16 24                                  |
| C4F8ガス          | 幼生<br>(mTorr)      |           | 0     | 0 0.4  | 0.4                     | 0.6                                       |
| Ť.              | 4776               |           | -     | 1 2    | 3 2 1                   | 1 2 8                                     |

# 鄉 8 図

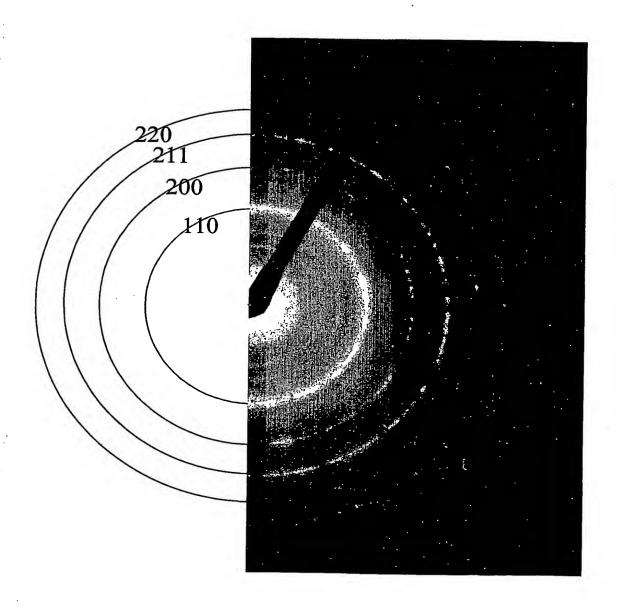
第9図



10/11



第11図



### INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP03/16097

|  |  |                                  | 101/0       | F03/1009/  |  |
|--|--|----------------------------------|-------------|--|--|
| A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER Int.Cl7 H01F10/16  |  |                                  |             |  |  |
| According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC  |  |                                  |             |  |  |
|  | OS SEARCHED  |                                  |             | <u> </u>   |  |
| int.   | Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)  Int.Cl <sup>7</sup> H01F10/16 |                                  |             |  |  |
| Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched  Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2004  Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2004 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2004  |  |                                  |             |  |  |
| Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)   |  |                                  |             |  |  |
| C. DOCU  | MENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT  |                                  |             |  |  |
| Category*  | Citation of document, with indication, where   |                                  | nt passages | Relevant to claim No.                              |  |
| X<br>Y   | JP 6-140687 A (Hitachi Maxe<br>20 May, 1994 (20.05.94),<br>Full text; Figs. 1 to 3<br>(Family: none)                     | 11, Ltd.),                       |             | 1,2,5-13,15,<br>17,18,20,22<br>3,4,14,16,<br>19,21 |  |
| Y  | JP 10-308320 A (Sumitomo Me<br>17 November, 1998 (17.11.98)<br>Full text; Fig. 1<br>(Family: none)                       | tal Industries                   | ;, Ltd.),   | 3,4,14,19  |  |
| Y  |  | '.<br>N 1165579 A<br>D 97/4469 A |             | 16   |  |
| × Further  | r documents are listed in the continuation of Box C.   | See patent famil                 | y annex.    |  |  |
| Special categories of cited documents:  'A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance  earlier document but published on or after the international filing date or understand the principle or theory underlying the invention document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means  p" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed  Date of the actual completion of the international search  23 February, 2004 (23.02.04)  "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or can |  |                                  |             |  |  |
| lame and mai<br>Japan  | iling address of the ISA/<br>ese Patent Office   | Authorized officer               |             |  |  |
| acsimile No.   | •  | Telephone No.                    |             |  |  |

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP03/16097

| alegory* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages                    | Dolorostis           |
|----------|---|----------------------|
| Y        | JP 10-241935 A (Toshiba Corp.), 11 September, 1998 (11.09.98), Full text; Figs. 1 to 7 (Family: none) | Relevant to claim No |
|          |   |                      |
|          |   |                      |
|          |   |                      |
|          |   |                      |
|          |   |                      |
|          |   |                      |
|          |   |                      |
|          |   | ·                    |
|          |   |                      |

Form PCT/ISA/210 (continuation of second sheet) (July 1998)

A. 発明の属する分野の分類(国際特許分類(IPC))

Int. Cl' H01F 10/16

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料(国際特許分類(IPC))

Int. Cl' H01F 10/16

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報

1922-1996年

日本国公開実用新案公報

1971-2004年

日本国登録実用新案公報

1994-2004年

日本国実用新案登録公報

1996-2004年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

| 引用文献の<br>カテゴリー* | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示                           | 関連する 請求の範囲の番号                     |  |  |  |
|-----------------|---|-----------------------------------|--|--|--|
| X               | JP 6-140687 A (日立マクセル株式会社)<br>1994.05.20,全文,第1-3図 (ファミリーなし) | 1, 2, 5–13, 15,<br>17, 18, 20, 22 |  |  |  |
| Y               |   | 3, 4, 14, 16, 1<br>9, 21          |  |  |  |
| Y               | JP 10-308320 A (住友金属工業株式会社)<br>1998.11.17,全文,第1図 (ファミリーなし)  | 3, 4, 14, 19                      |  |  |  |
|                 |   |                                   |  |  |  |

#### 区欄の続きにも文献が列挙されている。

□ パテントファミリーに関する別紙を参照。

- \* 引用文献のカテゴリー
- 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示す もの
- 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日 以後に公表されたもの
- 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行 日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する 文献(理由を付す)
- 「O」ロ頭による開示、使用、展示等に言及する文献
- 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

- の日の後に公表された文献
- 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって 出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論 の理解のために引用するもの
- 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明 の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
- 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以 上の文献との、当業者にとって自明である組合せに よって進歩性がないと考えられるもの
- 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

23.02.2004

国際調査報告の発送日

09. 3. 2004

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915 東京都千代田区設が関三丁目4番3号 特許庁審査官(権限のある職員) 山田 正文 5R 3142

電話番号 03-3581-1101 内線 3565

|   |                     |                                   | 16097    |  |  |
|---|---------------------|-----------------------------------|----------|--|--|
|   | C (続き) 関連すると認められる文献 |                                   |          |  |  |
|   | 引用文献の<br>カテゴリー*     | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示 | 関連する     |  |  |
| . | Y                   | JP 9-35927 A (株式会社トーキン)           | 請求の範囲の番号 |  |  |
|   |                     | 1 9 9 7. 0 2. 0 7, 全文, 第 1 — 4 図  | 16       |  |  |
|   |                     | & EP 0785557 A & CN 1165570 A     |          |  |  |
|   |                     | & KR 0267358 A & WO 97/4469 A     |          |  |  |
|   |                     |                                   |          |  |  |
|   | Y                   | JP 10-241935 A (株式会社東芝)           | 21       |  |  |
| . |                     | 1998.09.11,全文,第1-7図(ファミリーなし)      | 21       |  |  |
|   |                     |                                   |          |  |  |
|   |                     | ,                                 |          |  |  |
|   |                     |                                   |          |  |  |
| 1 |                     | ·                                 |          |  |  |
|   |                     |                                   |          |  |  |
|   |                     | į                                 |          |  |  |
|   |                     |                                   | •        |  |  |
|   |                     |                                   |          |  |  |
|   |                     |                                   |          |  |  |
|   |                     | ,                                 |          |  |  |
|   |                     |                                   |          |  |  |
| l |                     |                                   |          |  |  |
|   |                     | ·                                 |          |  |  |
|   |                     |                                   | [        |  |  |
| ĺ |                     |                                   |          |  |  |
|   |                     |                                   |          |  |  |
|   | •                   |                                   |          |  |  |
|   |                     |                                   |          |  |  |
|   |                     |                                   | . -      |  |  |
|   |                     |                                   |          |  |  |
|   |                     |                                   | .        |  |  |
|   |                     |                                   |          |  |  |
|   |                     |                                   |          |  |  |
|   |                     |                                   |          |  |  |
|   | Ì                   |                                   | ·        |  |  |
|   | İ                   |                                   |          |  |  |
|   |                     |                                   |          |  |  |
|   |                     | <u>.</u>                          |          |  |  |
|   |                     | · .                               |          |  |  |
|   |                     | 19 n                              |          |  |  |
|   |                     |                                   |          |  |  |
|   |                     | ·                                 |          |  |  |